

磁性絶縁体/金属二層構造におけるスピン流生成の 微視的理論

著者	大沼 悠一
号	70
学位授与機関	Tohoku University
学位授与番号	理博第2953号
URL	http://hdl.handle.net/10097/64204

論文内容要旨

(NO. 1)

氏 名	大沼 悠一	提出年	平成 27 年
学位論文の 題 目	磁性絶縁体/金属二層構造におけるスピン流生成の微視的理論		

論文目次

第 1 章 序論	1
1.1 スピン流.....	1
1.2 スピンホール効果.....	2
1.3 スピンポンピング.....	3
1.4 スピンゼーベック効果.....	4
1.5 本研究の目的.....	6
1.5.1 非平衡 Green 関数法を用いたスピンポンピング現象の定式化.....	6
1.5.2 反強磁性体やフェリ磁性体へのスピンゼーベック効果の拡張.....	8
1.5.3 交流磁場と温度勾配を同時に印加した際のスピン流生成現象の定式化	10
1.6 本論文の構成.....	10
第 2 章 非平衡 Green 関数法とスピン流生成の計算方法	13
2.1 非平衡 Green 関数法の導入.....	13
2.1.1 Keldysh 経路積分.....	13
2.1.2 各 Green 関数同士で成立する関係式.....	15
2.2 非平衡 Green 関数を用いた摂動計算の手順.....	16
2.2.1 Langreth の定理.....	16
2.2.2 非平衡 Green 関数を用いた摂動計算の手順.....	21
2.3 磁性絶縁体/金属界面における生成スピン流.....	25
2.3.1 磁性絶縁体に隣接する金属のスピン流.....	26
2.3.2 界面で生成されるスピン流の非平衡 Green 関数を用いた表現.....	27
2.3.3 界面での生成スピン流の摂動計算.....	27
2.3.4 金属へ注入されるスピン流と Green 関数の成分との関係.....	30
2.4 本章のまとめ.....	31

第3章 キュリー温度近傍にある遍歴磁性金属への増強された 直流スピンプンピング

33

3.1 従来のスピンプンピングの理論研究との比較.....	33
3.2 計算のモデル.....	34
3.3 直流スピンプンピングの線形応答理論に基づく定式化.....	35
3.3.1 交流磁場に対して無摂動な強磁性絶縁体のスピン相関関数.....	36
3.3.2 交流磁場下にある強磁性絶縁体のスピン相関関数.....	39
3.3.3 交流磁場の相関関数.....	41
3.3.4 交流磁場を摂動としたマグノンの Green 関数の Keldysh 成分.....	42
3.3.5 局所熱平衡にある金属中のスピン相関関数.....	44
3.3.6 スピンプンピングによって生成されるスピン流の式.....	44
3.3.7 生成スピン流の式の物理的解釈.....	45
3.4 キュリー温度近くにある遍歴強磁性金属への直流スピンプンピング.....	47
3.4.1 キュリー温度近くの生成スピン流の数値解析.....	47
3.4.2 キュリー温度近くの生成スピン流の温度依存性.....	49
3.4.3 逆スピントール効果の温度依存性.....	49
3.5 本章のまとめ.....	51

第4章 反強磁性絶縁体及びフェリ磁性絶縁体におけるスピントールバック効果 53

4.1 反強磁性体及びフェリ磁性体の特徴.....	53
4.2 反強磁性絶縁体及びフェリ磁性絶縁体と金属との界面相互作用.....	54
4.3 副格子ごとから得られる生成スピン流の式.....	55
4.4 副格子ごとのスピン帯磁率のモード展開.....	57
4.4.1 スピンハミルトニアン of マグノン表示.....	57
4.4.2 副格子ごとに定義されたスピン帯磁率 of マグノン Green 関数.....	63
4.5 スピントールバック効果のモード展開表示.....	64
4.5.1 モード毎に反転するスピン流の符号の解釈.....	66
4.6 反強磁性・フェリ磁性マグノンの偏極.....	66
4.6.1 電子スピンの偏極.....	67
4.6.2 強磁性の偏極.....	67
4.6.3 フェリ磁性マグノンの偏極.....	68
4.7 一軸磁気異方性を持つ反強磁性体におけるスピントールバック効果.....	69
4.8 フェリ磁性絶縁体におけるスピントールバック効果の特徴.....	70
4.8.1 フェリ磁性体におけるスピントールバック効果の特徴.....	70
4.8.2 補償温度における Gilbert 緩和項の収束.....	71
4.8.3 補償温度におけるスピントールバック効果.....	74
4.8.4 実験結果との比較:スピントールバック効果の二度の符号反転.....	78
4.8 本章のまとめ.....	81

第 5 章 温度勾配と交流磁場を同時に印加した際のスピンの生成**87**

5.1 計算に使用したモデル.....	87
5.1.1 局所熱平衡状態にある部分系への分割法.....	88
5.1.2 局所熱平衡状態にあるそれぞれの部分系の温度.....	88
5.1.3 計算に使用するモデル.....	88
5.2 生成スピンの定式化.....	91
5.2.1 スピンポンピングによる生成スピン流.....	93
5.2.2 スピンゼーベック効果による生成スピン流.....	94
5.2.3 温度勾配と交流磁場強度の積に比例する生成スピンの式.....	94
5.3 マグノンの Gilbert 緩和項変調.....	95
5.3.1 温度差に比例する Gilbert 緩和項の導出.....	95
5.3.2 強磁性絶縁体/金属界面を流れる熱流の計算.....	96
5.3.3 熱流の Gilbert 緩和項変調の関係.....	97
5.4 理論と実験の比較.....	98
5.4.1 温度勾配下での強磁性絶縁体/金属二層構造の線幅の変化の実験.....	98
5.4.2 理論と実験の比較.....	99
5.5 温度勾配で誘起されるマグノンの不安定性とマイクロ波発振.....	100
5.5.1 マグノンの不安定性のスピンの流に基づく解釈.....	100
5.5.2 温度勾配を印加した際の Gilbert 緩和項の温度依存性.....	100
5.6 本章のまとめ.....	102

第 6 章 結論**103****参考文献****109**

電子の持つ自由度のうち電荷だけでなくスピン角運動量をも積極的に制御及び利用することを指す「スピントロニクス」と呼ばれる分野において、近年、スピン角運動量の流れである「スピン流」という新しい物理量が注目を集めている。中でも電流を伴わないスピン流は純スピン流と呼ばれ、物質中の伝導電子だけでなく、磁性体の素励起であるマグノンによっても伝搬されることが示されており、エネルギー損失を抑えた情報伝達を実現させる可能性が示唆されている。

スピン流の基礎物理の解明にはスピン流の生成方法を確立することが不可欠であり、中でも、磁性絶縁体におけるスピン流生成方法として「スピンプンピング」と「スピンゼーベック効果」が実験と理論の両面から盛んに研究されている。磁性絶縁体に白金などの金属を接合した二層構造において、交流磁場を与えて磁化の歳差運動を誘起すると、白金においてスピン流が生成される現象をスピンプンピング、二層構造に温度勾配が印加されるとスピン流が白金内部に生成される現象をスピンゼーベック効果と呼ぶ。

しかしながら、従来の理論研究には未解決の問題が残されている。これまでになされてきたスピンプンピングの理論研究は、現象論的な方程式に立脚したものや、一電子描像に立脚したものといったように、金属の具体的なモデルに立脚した理論研究であり、モデルの詳細によらないスピンプンピング現象の定式化がなされてこなかった。また従来のスピンゼーベック効果の理論研究は、強磁性体において、強磁性体の相関関数を用いた微視的理論が構築されているが、この反強磁性体やフェリ磁性体への拡張はなされてこなかった。

そこで本研究では、こうした未解決問題を解明すべく、非平衡 Green 関数法を用いてスピンプンピングとスピンゼーベック効果に関する理論研究を行った。具体的には、(i)スピンプンピング現象の線形応答理論の構築、(ii)強磁性体におけるスピンゼーベック効果の線形応答理論の、反強磁性体及びフェリ磁性体への拡張、そして(iii)交流磁場と温度勾配を同時に印加した際のスピン流生成現象の微視的理論の構築、の3つの課題を遂行した。その結果(i')金属をどうモデル化するかによらずに、金属の動的帯磁率の虚部を用いてスピンプンピング現象が定式化されること、(ii')反強磁性体やフェリ磁性体のマグノンの偏極方向がスピンゼーベック効果に反映されること(iii')温度勾配と交流磁場強度に比例したスピン流が得られ、それに伴ってマグノンが不安定化されることを、などを示すことができた。

本論文は以下の6章により構成される。

第1章では本研究の背景ならびに目的を述べ、本研究で着目するスピン流の基礎物理、スピンプンピング及びスピンゼーベック効果の研究の現状を述べ、先行研究との比較から本研究の持つ意義を示した。

第2章では、スピンプンピング及びスピンゼーベック効果によって磁性絶縁体から金属へ注入されるスピン流を、非平衡 Green 関数法を用いて計算する手法の詳細を述べた。

第3章では、非平衡 Green 関数法に基づいたスピンプンピング現象の定式化を行い、生成スピン流の線形応答理論を構築し、金属のモデルによらずに、生成スピン流が金属の動的帯磁率の虚部に比例することを初めて導出した。強磁性絶縁体と金属の二層構造を想定し、強磁性絶縁体の低エネルギー励起はスピン波近似で、金属は不純物によるスピンの拡散とクーロン相互作用を含むハミルトニアンでモデル化した。また、界面においては sd 型の界面相互作用を想定した。生成スピン流の式を導出する際は、交流磁場と局在スピンの相互作用

をモデル化し、界面相互作用と交流磁場との相互作用についてそれぞれ 2 次までの摂動計算を行った。その結果、強磁性絶縁体に隣接する金属のモデルハミルトニアンの詳細によらず、生成スピン流は金属の動的横帯磁率の虚部に比例することを明らかにした。ここで、生成スピン流が動的横帯磁率の虚部に比例するのは、揺動散逸関係式からの帰着であり、スピン流が金属のスピン揺らぎの強さに比例することを意味している。こうして本研究により、金属のモデルの詳細によらずに、スピンプンピングによる生成スピン流が金属の動的帯磁率の虚部に比例することが導かれた。

第 4 章では、反強磁性絶縁体及びフェリ磁性絶縁体/金属の二層構造におけるスピンゼーベック効果を強磁性体の場合での線形応答理論を拡張して解析し、マグノンの偏極方向の違いがスピン流の向きの違いに反映されることを初めて導出した。反強磁性絶縁体及びフェリ磁性絶縁体に対してスピン波近似と Bogoliubov 変換を行うと、2 種類のマグノンのモードが得られる。このモード展開を基にスピン流を計算した。反強磁性絶縁体及びフェリ磁性絶縁体と金属の界面を、副格子ごとの交換相互作用でモデル化した。界面に対して垂直方向に温度勾配を印加した場合を考え、反強磁性絶縁体及びフェリ磁性絶縁体と、金属とがそれぞれ局所熱平衡にあるとし、温度の情報を分布関数に含めた。その結果、得られる全スピン流は、2 種類のマグノンのモードが与えるスピン流の差によって表されることが示された。ここで、マグノンのモードごとの偏極を導入すると、それぞれのモードが逆向きに偏極することが示され、このことがスピン流の逆向きの符号に反映されていることが明らかとなった。また、この定式化から、理想的な反強磁性絶縁体/金属の二層構造では、外部磁場を 0 とするとスピンゼーベック効果が消失することを示した。一方で、フェリ磁性絶縁体 $\text{Gd}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ と白金との二層構造で観測された、温度の関数としてのスピンゼーベック効果における 2 度の符号反転について、1. 磁気補償効果によるスピン流の符号反転、2. 逆向きのスピン流を運ぶ $\text{Gd}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ 中の 2 つのマグノンのモードの競合、の 2 つがそれぞれの符号反転の起源であることを示し、実験結果の理論的説明に成功した。本研究により、スピン波近似におけるマグノンの偏極方向がスピンゼーベック効果による生成スピン流の向きの違いに反映されることが理論的に示され、その結果スピン流の 2 度の符号反転などの新奇な現象の機構が解明された。

第 5 章では、強磁性絶縁体/金属の二層構造に、交流磁場と温度勾配を同時に照射及び印加した際のスピン流生成現象を、非平衡 Green 関数法に基づいて定式化し、交流磁場と温度勾配の積に比例する新しい生成スピン流が得られることを初めて導出した。強磁性絶縁体にはスピン波近似を適用し、温度勾配は界面に垂直方向に存在するとした。このとき、熱流は界面を透過するフォノンによって運ばれるとし、フォノンと金属の電子スピン揺らぎとの相互作用を想定して、フォノンとの相互作用が繰り込まれた電子スピンの帯磁率を摂動計算し、スピン流の式に代入した。その結果、得られる全スピン流には、交流磁場強度に比例するスピン流と温度勾配に比例するスピン流の他に、交流磁場強度と温度勾配の積に比例するスピン流が得られることを初めて明らかにした。また、この 3 つ目のスピン流は、金属に注入されたスピン流がフォノンの運ぶ熱流によって引きずられる効果(フォノン・ドラッグ効果)によって引き起こされることを示した。さらに、こうして生成されるスピン流に伴って得られる、マグノンの Gilbert 緩和項を解析し、交流磁場のみによる緩和変調に加えて、強

磁性絶縁体のフォノンの緩和時間と温度勾配の積に比例する緩和変調が現れることを明らかにした．そして，金属側を高温にしたまま系全体を冷却すると，フォノンドラッグの効果によりマグノンの Gilbert 緩和項がゼロとなり，マグノンの不安定性が誘起されうる場合があることを指摘した．本研究によって，強磁性絶縁体と金属の二層構造に交流磁場と温度勾配を同時に印加した場合，交流磁場によるスピンプンピングと温度勾配によるスピnzeーベック効果に加えて，交流磁場と温度勾配の積に比例する新奇のスピin流が生成されることと，それに伴ってマグノンが不安定化される可能性が初めて導かれた．

第 6 章では本論文で得られた結果をまとめた．

本研究の遂行により，スピンプンピング現象の線形応答理論と反強磁性体やフェリ磁性体におけるスピnzeーベック効果の線形応答理論，そして交流磁場と温度勾配を同時に印加した際のスピin流生成現象の微視的理論が構築された．スピンプンピング現象の線形応答理論から，金属の詳細によらず生成スピin流が動的帯磁率に比例し，多体効果は動的帯磁率を通してスピin流に取り込まれることが示された．また，反強磁性及びフェリ磁性スピnzeーベック効果の線形応答理論から，マグノンの偏極方向がスピin流の符号に反映され，反強磁性絶縁体やフェリ磁性絶縁体ならではのスピnzeーベック効果の特徴的な振る舞いが導かれた．さらに，温度勾配と交流磁場を同時に印加した際のスピin流生成現象の微視的理論から，温度勾配と交流磁場強度の積に比例する生成スピin流が存在すること，それに伴ってマグノンが不安定化されうることが導かれた．本研究により得られたスピンプンピングやスピnzeーベック効果に対する知見は，スピin流物理の基礎原理解明に不可欠であると同時に，幅広いスピin流材料設計のための理論的指針になるものと期待される．

論文審査の結果の要旨

物質中の電子スピン角運動量の流れであるスピン流の生成・利用法の発見は、スピントロニクスの急速な発展をもたらした。スピン流を用いることで、ナノ領域での磁性制御や情報の読み取りが可能になっており、情報デバイスやエネルギー変換素子への応用も始まっている。スピン流を生成する汎用的な方法として、スピンゼーベック効果が知られている。スピンゼーベック効果は、磁性絶縁体/金属接合構造において温度勾配からスピン流を生成させる現象であり、スピントロニクスのみならず、熱電変換の新しい原理としても注目されている。スピンゼーベック効果の本質は、熱的なスピンプンプ効果であると考えられており、散乱理論に基づいた理論が構築されてきた。

本論文は、スピンゼーベック効果とスピンプンピング効果の非平衡グリーン関数を用いて定式化し、その物理的機構を議論したものである。その結果、スピンゼーベック効果とスピンプンピング効果を体系的に記述する線形応答理論を得ることに成功し、両効果を解析するための理論表式を導出した。この理論表式は物質の微視的パラメータで記述されているため、強い予言能力を有している。特に、磁気補償温度を有するフェリ磁性絶縁体におけるスピンゼーベック効果の温度依存性が符号反転を示すことを予言し、これは最近になって実験的に確認された。これは、本論文で構築した理論の正当性を証明するものである。

本論文は全6章から構成される。第1章では、スピン流やそれに付随する物理現象に関する基礎物理に関して概説した後、本研究の意義や目的について述べている。第2章では、まず非平衡グリーン関数に基づく摂動計算について説明し、これを用いてスピンゼーベック効果やスピンプンピング効果によって生成されたスピン流を計算するための方法をまとめている。第3章では、磁性絶縁体/金属接合におけるスピンプンピング効果の線形応答理論を構築している。この理論に基づいて、金属層がキュリー温度近傍にある強磁性体であるときにスピンプンピングによるスピン流生成効率が增大することを予言している。第4章では、磁気補償効果を示すフェリ磁性絶縁体や反強磁性絶縁体におけるスピンゼーベック効果の線形応答理論を構築し、特にその温度依存性に関する詳細な議論を行っている。第5章では、磁性絶縁体/金属接合に温度勾配と交流磁場を同時に印加した際のスピン流生成を同様の方法に基づき計算し、これらを同時に印加した時にもみ発現する磁気緩和変調やマイクロ波発振現象を予言している。第6章では、本研究の結論と展望がまとめられている。

大沼悠一提出の論文は、スピンゼーベック効果及びスピンプンピング効果に対する微視的理論を構築したものであり、学問的に高く評価される。この成果は、提出者の大沼悠一が高い学識と自立して研究する能力があることを示すと判定される。よって、博士（理学）の学位論文として合格と認める。